

# VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS



## PCT

### INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

(Kapitel II des Vertrags über die internationale Zusammenarbeit auf dem Gebiet des Patentwesens)

REC'D 01 NOV 2005

PCT

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts 0000053707	<b>WEITERES VORGEHEN</b> siehe Formblatt PCT/PEAA416	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP2004/009883	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 04.09.2004	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 10.09.2003
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK C07C209/48, C07C211/27		
Anmelder BASF AKTIENGESELLSCHAFT et al.		
<p>1. Bei diesem Bericht handelt es sich um den internationalen vorläufigen Prüfungsbericht, der von der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde nach Artikel 35 erstellt wurde und dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt wird.</p> <p>2. Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 5 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.</p> <p>3. Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; diese umfassen</p> <p>a. <input checked="" type="checkbox"/> (an den Anmelder und das Internationale Büro gesandt) insgesamt 2 Blätter; dabei handelt es sich um</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Blätter mit der Beschreibung, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit Berichtigungen, denen die Behörde zugestimmt hat (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsvorschriften).</p> <p><input type="checkbox"/> Blätter, die frühere Blätter ersetzen, die aber aus den in Feld Nr. 1, Punkt 4 und im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde eine Änderung enthalten, die über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgeht.</p> <p>b. <input type="checkbox"/> (nur an das Internationale Büro gesandt) insgesamt (bitte Art und Anzahl der/des elektronischen Datenträger(s) angeben), der/die ein Sequenzprotokoll und/oder die dazugehörigen Tabellen enthält/enhalten, nur in computerisierter Form, wie im Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll angegeben (siehe Abschnitt 802 der Verwaltungsvorschriften).</p>		
<p>4. Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. I Grundlage des Bescheids</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. II Priorität</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. III Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. IV Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VI Bestimmte angeführte Unterlagen</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VII Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung</p> <p><input type="checkbox"/> Feld Nr. VIII Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung</p>		
Datum der Einreichung des Antrags  07.07.2005	Datum der Fertigstellung dieses Berichts  31.10.2005	
Name und Postanschrift der mit der internationalen Prüfung beauftragten Behörde   Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter  Kiernan, A Tel. +49 89 2399-8033 	

# INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/009883

## Feld Nr. I Grundlage des Berichts

1. Hinsichtlich der **Sprache** beruht der Bericht auf der internationalen Anmeldung in der Sprache, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist:
- ☐ Der Bericht beruht auf einer Übersetzung aus der Originalsprache in die folgende Sprache, bei der es sich um die Sprache der Übersetzung handelt, die für folgenden Zweck eingereicht worden ist:
    - ☐ internationale Recherche (nach Regeln 12.3 und 23.1 b))
    - ☐ Veröffentlichung der internationalen Anmeldung (nach Regel 12.4)
    - ☐ internationale vorläufige Prüfung (nach Regeln 55.2 und/oder 55.3)
2. Hinsichtlich der **Bestandteile\*** der internationalen Anmeldung beruht der Bericht auf (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt*):

### Beschreibung, Seiten

1-13 In der ursprünglich eingereichten Fassung

### Ansprüche, Nr.

1-15 eingegangen am 08.07.2005 mit Schreiben vom 07.07.2005

### Zeichnungen, Blätter

1/1 In der ursprünglich eingereichten Fassung

- ☐ einem Sequenzprotokoll und/oder etwaigen dazugehörigen Tabellen - siehe Zusatzfeld betreffend das Sequenzprotokoll
3. ☐ Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:
- ☐ Beschreibung: Seite
  - ☐ Ansprüche: Nr.
  - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
  - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
  - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):
4. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der diesem Bericht beigelegten und nachstehend aufgelisteten Änderungen erstellt worden, da diese aus den im Zusatzfeld angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2 c)).
- ☐ Beschreibung: Seite
  - ☐ Ansprüche: Nr.
  - ☐ Zeichnungen: Blatt/Abb.
  - ☐ Sequenzprotokoll (*genaue Angaben*):
  - ☐ etwaige zum Sequenzprotokoll gehörende Tabellen (*genaue Angaben*):

\* Wenn Punkt 4 zutrifft, können einige oder alle dieser Blätter mit der Bemerkung "ersetzt" versehen werden.

**INTERNATIONALER VORLÄUFIGER BERICHT  
ÜBER DIE PATENTIERBARKEIT**

Internationales Aktenzeichen  
PCT/EP2004/009883

---

**Feld Nr. V Begründete Feststellung nach Artikel 35 (2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

---

1. Feststellung
- |                                |                      |
|--------------------------------|----------------------|
| Neuheit (N)                    | Ja: Ansprüche 1-15   |
|                                | Nein: Ansprüche      |
| Erfinderische Tätigkeit (IS)   | Ja: Ansprüche        |
|                                | Nein: Ansprüche 1-15 |
| Gewerbliche Anwendbarkeit (IA) | Ja: Ansprüche: 1-15  |
|                                | Nein: Ansprüche:     |

2. Unterlagen und Erklärungen (Regel 70.7):

**siehe Beiblatt**

**Zu Punkt V**

**Begründete Feststellung hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung**

D1: EP-A-1 279 661

D2: EP-A-1 193 244

D3: DE 20 41 360 A

Die vorliegende Anmeldung betrifft ein Verfahren zur Herstellung von Xylylendiamin durch Ammonoxidation von Xylol zu Phthalodinitril, Quenchen des gasförmigen Produktes der Ammonoxidationsstufe in einem organischen Lösungsmittel, Abtrennung der Hochsieder von der Quenchflüssigkeit und anschließende Hydrierung des Phthalodinitrils.

**Neuheit**

Die Verwendung von N-Methyl-2-pyrrolidon (NMP) als organisches Lösungsmittel für den Quench ist im Stand der Technik nicht offenbart.

Der Gegenstand der Ansprüche 1-15 ist damit neu.

**Erfinderische Tätigkeit**

Die vorliegende Anmeldung erfüllt nicht die Erfordernisse des Artikels 33(3) PCT; da der Gegenstand der Ansprüche 1-15 nicht auf einer erfinderischen Tätigkeit beruht.

D1 wird als nächstliegender Stand der Technik angesehen. Das darin beschriebene Verfahren unterscheidet sich von dem vorliegenden dadurch, daß Lösungsmittel wie meta-/para-Xylol, Pseudocumol, Mesitylen, Ethylbenzol, Methylpyridine, Benzonitril, meta-/para-Tolunitril, para-Tolunitril und Cyanopyridine als Lösungsmittel für den Quench vorgeschlagen werden (siehe D1, Anspruch 3 und Seite 4, Spalte 5, Zeilen 7-12), während in vorliegender Anmeldung die Verwendung von N-Methyl-2-pyrrolidon als Quenchflüssigkeit beansprucht wird.

Die zu lösende Aufgabe kann darin gesehen werden, ein Verfahren zur Herstellung von Xylylendiamin zur Verfügung zu stellen, welches verringerte Stoffströme, insbesondere Lösungsmittelströme, und somit die Verwendung von verkleinerten Apparaten und Maschinen ermöglicht.

Als Lösung wird die Verwendung von N-Methyl-2-pyrrolidon als Lösungsmittel für den Quench vorgeschlagen.

In Beispiel 7 (Seite 12) wird die Löslichkeit von Isophthalodinitril (IPDN) in N-Methyl-2-pyrrolidon (NMP), Pseudocumol und Mesitylen bei verschiedenen Temperaturen verglichen. Isophthalodinitril ist demnach besser löslich in NMP als in Pseudocumol oder Mesitylen.

Mit dem Schreiben vom 07.07.2005 wurde ein Versuchsbericht eingereicht, in dem die Löslichkeiten von Isophthalodinitril in einigen weiteren aromatischen Lösungsmitteln, darunter auch meta-Xylol, Benzonitril und meta-Tolunitril, mit der Löslichkeit in NMP in Abhängigkeit von der Temperatur verglichen werden.

Aus dem Bericht ist ersichtlich, dass NMP als Lösungsmittel für Isophthalodinitril den übrigen aufgeführten aromatischen Lösungsmitteln deutlich überlegen ist.

Der geänderte Anspruch 1 umfasst die Herstellung von meta- und para-Xylylendiamin über die Ammonoxidation von meta- bzw. para-Xylol zu Isophthalodinitril bzw. Terephthalodinitril.

Da jedoch für Terephthalodinitril keine Vergleiche der Löslichkeitswerte vorliegen, kann eine erfinderische Tätigkeit lediglich für die Herstellung von meta-Xylylendiamin, nicht aber von para-Xylylendiamin anerkannt werden (Artikel 33(3) PCT).

Im Schreiben vom 07.07.2005 (Seite 2, Absatz 8) wurde bemerkt, es bestehe keine begründete Vermutung, dass die höhere Löslichkeit nicht auch für Terephthalodinitril gegeben sei. Die Beweislast, dass ein technischer Effekt tatsächlich vorhanden ist, liegt jedoch bei demjenigen, der einen solchen Effekt beansprucht.

#### Industrielle Anwendbarkeit

Gegen die industrielle Anwendbarkeit bestehen keine Bedenken.

## Patentansprüche

1. Verfahren zur Herstellung von meta- oder para-Xylylendiamin umfassend die Schritte  
5 Ammonoxidation von meta- oder para-Xylol zu Iso- oder Terephthalodinitril, wobei das dampfförmige Produkt dieser Ammonoxidationsstufe direkt mit einem flüssigen organischen Lösungsmittel in Kontakt gebracht wird (Quench), Abtrennung von Produkten mit einem Siedepunkt höher als Phthalodinitril (Hochsiedern) aus der erhaltenen Quenchlösung oder -suspension und  
10 Hydrierung des Phthalodinitrils, dadurch gekennzeichnet, dass es sich bei dem für den Quench verwendeten organischen Lösungsmittel um N-Methyl-2-pyrrolidon (NMP) handelt, nach der Abtrennung der Hochsieder und vor der Hydrierung eine teilweise oder  
15 vollständige Abtrennung des NMPs und/oder von Produkten mit einem Siedepunkt niedriger als Phthalodinitril (Leichtsieder) erfolgt und das Phthalodinitril für den Hydrierschritt in einem organischen Lösungsmittel oder in flüssigem Ammoniak gelöst oder suspendiert ist.
2. Verfahren nach Anspruch 1 zur Herstellung von meta-Xylylendiamin umfassend  
20 die Schritte Ammonoxidation von meta-Xylol zu Isophthalodinitril und Hydrierung des Isophthalodinitrils.
3. Verfahren nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die  
25 Abtrennung von Hochsiedern aus der erhaltenen Quenchlösung oder -suspension destillativ über Sumpf erfolgt, während Phthalodinitril zusammen mit dem Lösungsmittel NMP und Leichtsiedern über Kopf abgetrennt werden.
4. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet,  
30 dass nach der Abtrennung der Hochsieder die teilweise oder vollständige Abtrennung des NMPs und/oder die Abtrennung von Leichtsiedern destillativ über Kopf erfolgt.
5. Verfahren nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die  
35 Auftrennung der erhaltenen Quenchlösung oder -suspension in Hochsieder, Leichtsieder und NMP und Phthalodinitril in einer Seitenabzugskolonne so erfolgt, dass Hochsieder über Sumpf, NMP und/oder Leichtsieder über Kopf und Phthalodinitril über einen Seitenabzug abgetrennt werden.
6. Verfahren nach den Ansprüchen 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass die  
40 Auftrennung der erhaltenen Quenchlösung oder -suspension in Hochsieder, Leichtsieder und NMP und Phthalodinitril in einer Trennwandkolonne so erfolgt, dass Hochsieder über Sumpf, NMP und/oder Leichtsieder über Kopf und Phtha-

15

Iodinitril über einen Seitenabzug im Trennwandbereich der Kolonne abgetrennt werden.

- 5 7. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Phthalodinitril für den Hydrierschritt in NMP, Xylol, Benzylamin, Tolyamin und/oder Xylylendiamin gelöst oder suspendiert ist.
- 10 8. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Hydrierung in Gegenwart von Ammoniak durchgeführt wird.
- 15 9. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Ammonoxidation bei Temperaturen von 300 bis 500°C an einem Katalysator enthaltend V, Sb und/oder Cr, als Vollkatalysator oder auf einem inerten Träger, durchgeführt wird.
- 20 10. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass bei dem Quench mit NMP die Temperatur des Quenchaustrags 40 bis 180°C beträgt.
- 25 11. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die Hydrierung bei Temperaturen von 40 bis 150°C an einem Katalysator enthaltend Ni, Co und/oder Fe, als Vollkatalysator oder auf einem inerten Träger, durchgeführt wird.
- 30 12. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass nach der Hydrierung eine Reinigung des Xylylendiamins durch Abdestillation des gegebenenfalls eingesetzten Lösungsmittels und Ammoniaks sowie gegebenenfalls leichtersiedender Nebenprodukte über Kopf und destillativer Abtrennung von schwerersiedenden Verunreinigungen über Sumpf erfolgt.
- 35 13. Verfahren nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass man nach der Hydrierung das gegebenenfalls eingesetzte Lösungsmittel und Ammoniak sowie gegebenenfalls leichtsiedende Nebenprodukte abdestilliert und danach Xylylendiamin destillativ von schwersiedenden Verunreinigungen abtrennt.
- 40 14. Verfahren nach einem der beiden vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Xylylendiamin nach der Destillation zur weiteren Reinigung mit einem organischem Lösungsmittel extrahiert wird.
15. Verfahren nach dem vorhergehenden Anspruch, dadurch gekennzeichnet, dass man zur Extraktion Cyclohexan oder Methylcyclohexan verwendet.